



## Application d'un modèle de viscosité à la coulée d'explosifs : Modélisation du temps de coulée.

Jean-Philippe Guillemin, A. Werckerle, L. Brunet, Olivier Bonnefoy, Gérard Thomas

### ► To cite this version:

Jean-Philippe Guillemin, A. Werckerle, L. Brunet, Olivier Bonnefoy, Gérard Thomas. Application d'un modèle de viscosité à la coulée d'explosifs : Modélisation du temps de coulée.. Rhéologie, 2006, 10, pp.40-48. hal-00127198

**HAL Id: hal-00127198**

**<https://hal.science/hal-00127198>**

Submitted on 29 Jan 2007

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Application d'un modèle de viscosité à la coulée d'explosifs : Modélisation du temps de coulée.

J.P. Guillemin<sup>(1)</sup>, A. Werckerle<sup>(1)</sup>, L. Brunet<sup>(1)</sup>, O. Bonnefoy<sup>(2)</sup>, G. Thomas<sup>(2)</sup>

(1) Giat-industries, Centre de Bourges, 7 route de Guerry, 18023 Bourges Cedex

(2) Ecole Nationale Supérieure des Mines de St Etienne, Centre SPIN, département P2MC, 158 Cours Fauriel, 42023 Saint Etienne cedex 2, France [bonnefoy@emse.fr](mailto:bonnefoy@emse.fr)

## RÉSUMÉ

La rhéologie des coulées d'explosifs est décrite par la dynamique des écoulements diphasiques de suspensions concentrées. Afin d'améliorer la manipulation de produits présentant par nature un risque vis-à-vis des agressions mécaniques et thermiques, des avancées issues des travaux de recherche menés depuis de nombreuses années dans le secteur du génie civil permettent de développer de nouveaux procédés pyrotechniques. L'objectif de ces travaux est de proposer un modèle prédictif des temps d'écoulement des suspensions concentrées en matériaux énergétiques dans une configuration similaire au procédé de mise en oeuvre développé en production. Les résultats expérimentaux sont comparés à trois modèles (Quémada, Krieger-Dougherty, Mooney) représentant la viscosité dynamique comme étant fonction de la fraction volumique solide  $\phi$ , de l'empilement compact maximal  $\phi_m$  et de la viscosité du fluide interstitiel  $\mu_0$ . Le modèle de De Larrard est utilisé pour le calcul de  $\phi_m$ . Les hypothèses d'un fluide parfait et incompressible, pour le calcul du temps de coulée du fluide interstitiel  $\mu_0$ , aboutissent à la relation de Bernoulli et satisfont à l'expérience. Nous montrons que le modèle de Quémada conduit à des valeurs théoriques du temps de coulée de la suspension en bon accord avec les valeurs expérimentales.

## ABSTRACT

Diphasic flows of concentrated suspensions describe the rheology of melt casting explosives. Anxious to limit the handling of pyrotechnical products, presenting by nature a risk with respect to the mechanical and thermal aggressions, we take profit from the results obtained from the research works undertaken for many years in the civil engineering sector. The objective of this work is to propose a predictive model of the flow time of a concentrated suspension through a nozzle situated at the bottom of a tank. Similarly to our industrial process, the suspension is made out of energetic materials and flows under gravity. Experimental results are compared to three models (Quemada, Krieger-Dougherty and Mooney) that predict the viscosity  $\mu$  of a suspension as a function of the solid volume fraction  $\phi$ , the maximum packing density  $\phi_m$  and the interstitial liquid viscosity  $\mu_0$ . The model of De Larrard is used to calculate  $\phi_m$ . The experimentally measured pure liquid viscosity is comparable to the prediction made with Bernoulli theorem, where the liquid is considered as incompressible and perfect. It turns out that the Quemada model gives a fair agreement between predictions and experiments.

## MOTS-CLÉS

suspensions concentrées ; temps de coulée d'explosif ; empilement compact maximal ; fluide parfait ; relation de Bernoulli.

## KEYWORDS

concentrated suspensions; melt casting explosives ; flow time ; compaction ; incompressible and perfect fluid ; Bernoulli theorem

## 1-INTRODUCTION

Les matériaux énergétiques mis en œuvre par coulée-fondue sont le plus souvent constitués de TNT (2,4,6-trinitrotoluène) qui représente la matrice liquide du mélange. Le TNT a l'avantage d'être stable et peu sensible à l'état fondu. En revanche ses performances détoniques sont moyennes avec une vitesse de détonation calculée  $D_{calc} = 6880 \text{ m.s}^{-1}$ . Ces propriétés détoniques peuvent être améliorées par addition d'explosifs plus performants [1] tels que l'ONTA (3-nitro-1,2,4-triazole-5-one,  $D_{calc} = 8120 \text{ m.s}^{-1}$ ), le HMX (1,3,5,7-tetranitro-1,3,5,7-tetraazocyclooctane,  $D_{calc} = 9100 \text{ m.s}^{-1}$ ) et/ou de RDX (1,3,5-trinitro-1,3,5-triazocyclohexane,  $D_{calc} = 8520 \text{ m.s}^{-1}$ ) ainsi que par des charges inertes telles que l'aluminium pour ses effets renforçateurs spécifiques. Ces espèces, ONTA, HMX, RDX et aluminium, sont solides et stables dans la plage des températures appliquées lors de la mise en œuvre. Il est donc possible de réaliser des mélanges constitués de grains explosifs puissants en suspension dans du TNT fondu. Pour améliorer la stabilité de la suspension ou les propriétés mécaniques du produit fini, des additifs fusibles sont ajoutés au mélange.

Le procédé consiste à porter les espèces fusibles (TNT et additifs) juste au-dessus de leur température de fusion, dans un réacteur agité, à ajouter les espèces pulvérulentes non-fusibles puis à couler le mélange dans un moule.

La particularité des mélanges énergétiques réalisés par coulée-fondue repose sur l'incorporation d'une fraction volumique en espèces solides élevée ( $> 0,50$ ) tandis que la granulométrie des particules, de morphologie parfois irrégulière s'étend sur un large domaine (1 à 800  $\mu\text{m}$ ). L'un des domaines industriels se rapprochant au mieux de ces caractéristiques est celui des bétons. Les avancées techniques et scientifiques faites dans ce domaine [2, 3, 4] donnent un avantage majeur dans la compréhension des problèmes d'écoulement des matériaux énergétiques mis en œuvre par coulée-fondue.

L'objectif de cet article est d'étudier expérimentalement l'influence, sur la viscosité d'une suspension, de la fraction volumique des espèces solides et de leur distribution granulométrique puis de proposer un modèle prédictif des temps d'écoulement des suspensions concentrées en matériaux énergétiques dans une configuration similaire à celle développée en production. Les résultats expérimentaux seront comparés à trois modèles (Quémada, Krieger-Dougherty, Mooney) permettant d'estimer la viscosité dynamique  $\mu$  d'une suspension en fonction de la fraction volumique de solide  $\phi$ , la fraction volumique maximale théorique  $\phi_m$  et la viscosité dynamique du fluide interstitiel  $\mu_0$ .

En d'autres termes, le modèle proposé traduit l'influence du désordre induit par la présence des espèces granulaires sur le temps de coulée d'un fluide parfait incompressible. L'étude porte sur l'influence d'une faible variation de formulation et de matières premières sur les temps de coulée. Pour cela, 3 formulations d'explosifs sont établies pour un volume total de 5700  $\text{cm}^3$ .

## 2-PRODUITS ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

### 2.1-PRODUITS

Les produits utilisés sont référencés dans le tableau 1.

Constituants	Nom	Masse vol. ( $\text{g/cm}^3$ )	$T_{\text{fusion}}$ ( $^{\circ}\text{C}$ )
TNT	2,4,6-trinitrotoluène	1,65	81
A	Additif	1	83
Al	Aluminium	2,7	660
ONTA	3-nitro-1,2,4-triazol-5-one	1,92	279

Tableau 1 : Produits utilisés

### 2.1.1. Phase liquide

La phase liquide est composée de TNT et de l'additif fusible A. La viscosité dynamique à 85 °C de l'additif est mesurée à l'aide d'un viscosimètre à géométrie Couette (Rhéomat 30, Contrave). Un bain thermostaté à  $85 \pm 0,1^\circ\text{C}$  est utilisé pour le contrôle de la température.

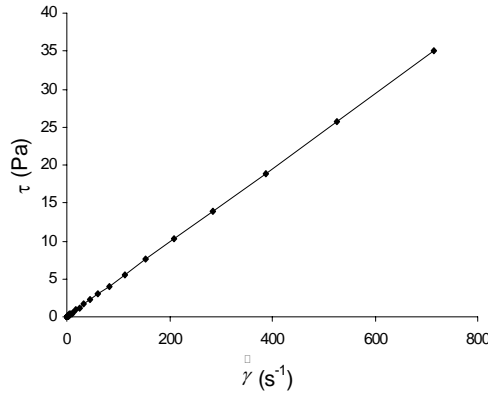


Figure 1 : Comportement rhéologique de l'additif

Les résultats montrent que l'additif a un comportement newtonien et que sa viscosité dynamique est de 48,6 mPa.s à 85°C (figure 1).

La viscosité dynamique du TNT est calculée selon la relation établie par Parry et Billon [5] où la viscosité du TNT  $\mu_{TNT}$  varie en fonction de la température T (Kelvin) selon :

$$\mu_{TNT} = \mu^* \exp\left(\frac{Q}{T}\right) \quad (1)$$

avec  $\mu^* = 0,541$  mPa.s et  $Q = 3570$  K. Dans cette formule, la température T, en Kelvin, varie entre 368 et 369 K. Pour 85 °C, la viscosité dynamique du TNT est de 11,6 mPa.s.

Dans la suite des travaux, des essais seront effectués sur des mélanges TNT/A où la proportion en TNT, au sein de la phase liquide est majoritaire. Ce mélange TNT/A forme une émulsion instable à chaud d'où la difficulté d'effectuer des mesures correctes de viscosité. On fera donc l'hypothèse qu'étant donné la faible viscosité de chaque constituant, le mélange TNT/A possède une viscosité très faible permettant de négliger les effets visqueux.

### 2.1.2. Phase solide

Dans le cadre de cet article, les suspensions étudiées ne contiennent ni HMX, ni RDX. Les espèces solides en suspension sont exclusivement de l'aluminium et de l'ONTA.

Quatre lots d'ONTA, notés ONTA 1, ONTA 2, ONTA 3, ONTA 4 et deux lots d'aluminium, notés Al 1, Al 2 sont utilisés. Ils diffèrent par la distribution en taille des grains et par la morphologie de ces derniers.

La distribution de taille, en passant cumulé, des ONTA est déterminée par tamisage sous vibration (figure 2) et au granulomètre laser (Malvern Mastersizer 2000) pour les lots d'aluminium (figure 3). La morphologie des grains est déterminée par microscopie électronique à balayage (figures 4 et 5).

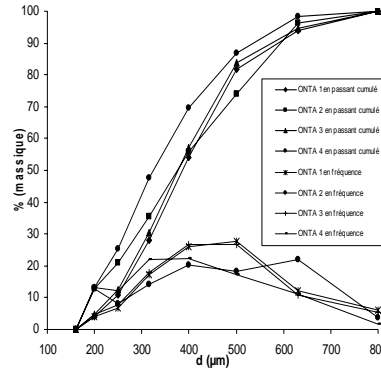


Figure 2 : Courbes de distribution en taille des lots d'ONTA

La distribution en taille des espèces granulaires fait ressortir des tailles moyennes de 350-400  $\mu\text{m}$  pour les lots d'ONTA et de 13  $\mu\text{m}$  pour les lots d'aluminium.

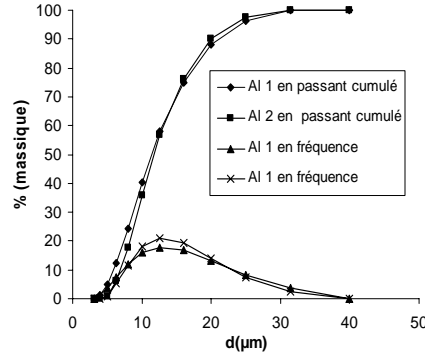


Figure 3 : Courbes de distribution en taille des lots d'aluminium

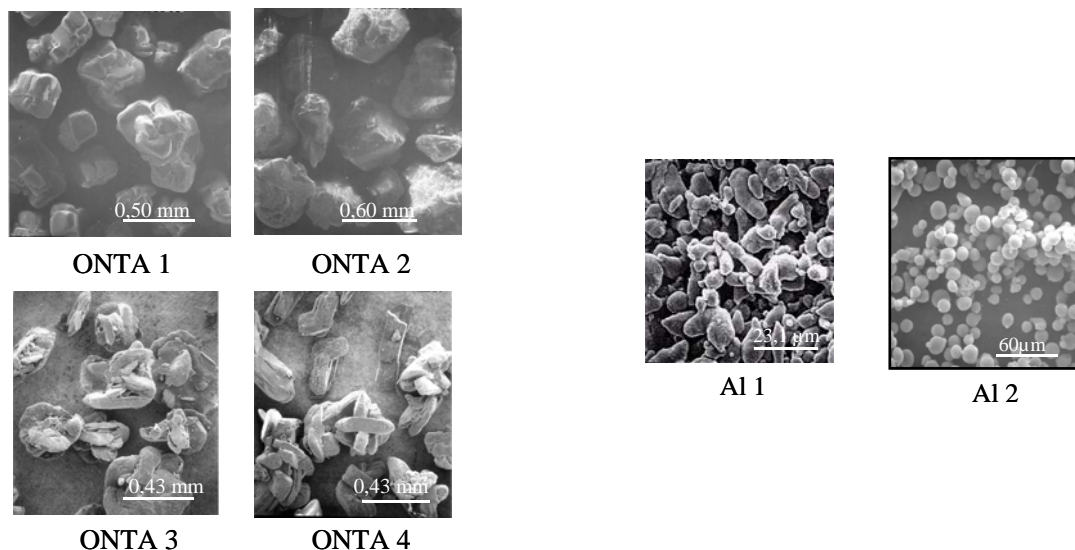
Les densités réelles  $\rho_r$ , déterminées par pycnométrie à hélium (Micromeritics), sont identiques à celles calculées à partir des structures cristallographiques. Cela signifie que les grains ne possèdent pas de porosité interne fermée.

La masse volumique apparente  $\rho_a$  est déterminée à l'aide d'un gravimètre de 25 mL. La compacité expérimentale C est donnée pour chaque espèce granulaire par :

La masse volumique apparente  $\rho_a$  est déterminée à l'aide d'un gravimètre de 25 mL. La compacité expérimentale C est donnée pour chaque espèce granulaire par :

$$C = \frac{\rho_a}{\rho_r} \quad (2)$$

Les résultats, donnés dans le tableau 2, seront utiles pour évaluer la fraction volumique maximale théorique.



*Figures 4 et 5 : Clichés MEB des ONTA et des aluminiums*

Lots	$\rho_r$ (g/cm <sup>3</sup> )	$\rho_a$ (g/cm <sup>3</sup> )	C
ONTA 1	1,92	0,99	0,52
ONTA 2	1,92	0,97	0,51
ONTA 3	1,92	0,75	0,39
ONTA 4	1,92	0,79	0,41
Al 1	2,7	1,1	0,41
Al 2	2,7	1,2	0,44

*Tableau 2 : Compacité expérimentale C des constituants*

## **2.2-DISPOSITIF EXPERIMENTAL**

La réalisation des suspensions concentrées en matériaux énergétiques est effectuée dans une cuve de volume maximum  $V_{max}$  ayant un diamètre interne  $d_1$  (3). Cette cuve est maintenue en température par circulation d'un liquide caloporteur dans une double-enveloppe. Elle est, en outre, équipée :

- d'un distributeur en espèces pulvérulentes (1),
- d'un moteur d'agitation pneumatique permettant d'atteindre des vitesses d'agitation de 250 tr/min (2)
- d'une vanne pneumatique (4), qui une fois actionnée, libère à travers une buse de diamètre  $d_2$ , le mélange dans un moule (5).

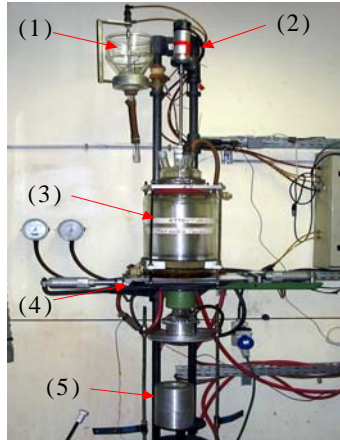


Figure 6 : Cuve de 15 litres

Les grandeurs caractéristiques de la cuve sont mentionnées dans le tableau 3. S1 représente la section de diamètre d1 (diamètre interne de la cuve) et S2, la section de la buse de diamètre d2.

$V_{max} (m^3)$	$15.10^{-3}$
$d_1 (m)$	$3.10^{-1}$
$d_2 (m)$	$3.10^{-2}$
$S_1 (m^2)$	$7,07.10^{-2}$
$S_2 (m^2)$	$7,07.10^{-4}$

Tableau 3: Grandeurs caractéristiques de la cuve

### 3-PROTOCOLE ET RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

#### 3.1-PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

La première étape consiste à porter les espèces fusibles (TNT et additifs) au dessus de leur température de fusion, à  $85 \pm 2^\circ C$ , dans un réacteur agité. Ensuite, les espèces pulvérulentes non-fusibles sont introduites (Al et ONTA).

Le volume total V de la suspension, correspondant à une hauteur initiale h, est identique pour toutes les expériences réalisées :

$V (m^3)$	$5,7.10^{-3}$
$h (m)$	$8,06.10^{-2}$

Tableau 4 : Volume et hauteur de la suspension dans la cuve

Après introduction des poudres, la vitesse d'agitation est diminuée afin de limiter les frictions intergranulaires pouvant constituer un risque pyrotechnique. Finalement, après homogénéisation, le mélange est coulé gravitairement, à travers un orifice situé au fond du réacteur, dans un moule ou dans un corps d'obus. Il est ensuite refroidi de façon contrôlée.

Pour chaque essai, le temps d'écoulement de la suspension est mesuré par un chronomètre et la texture des mélanges est photographiée.

#### 3.2-RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Pour étudier l'influence sur les temps de coulée de la composition et de la distribution en taille des grains d'un mélange composé de TNT, A, Al et ONTA, nous avons réalisé plusieurs essais,

avec différents lots d'ONTA et d'aluminium. Les expériences ont fait ressortir des problèmes de discontinuité de l'écoulement pour les mélanges contenant l'ONTA 3 et l'ONTA 4. Les essais impliquant ces lots d'ONTA (les essais 3 et 4 pour l'ONTA 3, les essais 6 et 7 pour l'ONTA 4) sont répétés deux fois afin d'évaluer la répétabilité des essais. Pour s'affranchir de l'influence du milieu granulaire, l'essai 9, sans espèce solide, est réalisé. Cet essai correspond au temps d'écoulement d'un volume de 5700 cm<sup>3</sup> de fluide interstitiel. Pour l'ensemble des essais, le rapport entre les proportions de TNT et d'A au sein de la phase liquide est égal à 2,5.

Le tableau 5 donne la composition des neuf mélanges ainsi que les temps de coulée expérimentaux  $\tau$  mesurés. La texture des pâtes énergétiques, pour les différents essais, est représentée figure 7.

N°Essai	Lot			Fraction volumique $\phi_i$			$\tau$ (s)
	Al	ONTA	TNT	A	Al	ONTA	
1	1	2	0,33	0,13	0,09	0,45	72
2	1	1	0,33	0,13	0,09	0,45	168
3	1	3	0,33	0,13	0,09	0,45	720
4	1	3	0,33	0,13	0,09	0,45	1200
5	2	2	0,33	0,13	0,09	0,45	64
6	1	4	0,35	0,14	0,07	0,44	330
7	1	4	0,35	0,14	0,07	0,44	303
8	2	4	0,35	0,14	0,07	0,44	220
9	N/A	N/A	0,72	0,28	0	0	11

*Tableau 5 : Formulation des explosifs*



*Figure 7 : texture des pâtes énergétiques*

#### **4-MODÉLISATION DES TEMPS DE COULÉE**

##### **4.1-LES MODÈLES DE PRÉDICTION DE LA VISCOSITÉ**

La littérature contient de nombreuses équations gouvernant la viscosité dynamique d'une suspension  $\mu$  à partir de la viscosité dynamique du fluide interstitiel  $\mu_0$  et de la fraction volumique en espèces solides  $\phi$ . La première à être établie fut celle d'Einstein (équation (3)),



valable uniquement dans le cas d'une suspension très diluée ( $\phi \leq 0,02$ ) de sphères monodisperses [6] :

$$\mu = \mu_0(1 + 2,5\phi) \quad (3)$$

Dans le domaine des suspensions concentrées ( $\phi > 0,5$ ) des relations empiriques ou semi-empiriques basées en partie sur la relation d'Einstein ont été développées [1]. Dans ce domaine, la viscosité de la suspension n'est plus essentiellement gouvernée par la viscosité du fluide interstitiel et sa fraction volumique solide mais dépend également de l'organisation optimale de cette fraction solide à sec représentée par la compacité maximale d'empilement granulaire  $\phi_m$ .

Trois relations, très fréquemment utilisées dans le domaine des suspensions concentrées, ont été retenues dans cette étude. Elles sont mentionnées dans le tableau 6.

Nom de l'équation	Equation
Krieger-Dougherty [7]	$\mu = \mu_0 \left( 1 - \frac{\phi}{\phi_m} \right)^{-2,5\phi_m} \quad (4)$
Quémada [8]	$\mu = \mu_0 \left( 1 - \frac{\phi}{\phi_m} \right)^{-2} \quad (5)$
Mooney [9]	$\mu = \mu_0 \exp \left( \frac{2,5\phi}{1 - \frac{\phi}{\phi_m}} \right) \quad (6)$

Tableau 6 : Quelques modèles semi-empiriques de la viscosité dynamique pour des suspensions concentrées

#### 4.2-ENONCÉ DU MODÈLE PROPOSÉ

##### 4.2.1. Relation entre viscosité dynamique $\mu$ et temps de coulée $\tau$

Travaillant dans le domaine des suspensions concentrées, nous nous plaçons dans le cas d'un écoulement à petit nombre de Reynolds ; le terme inertiel de l'équation de Navier-Stokes peut être négligé devant le terme visqueux. L'équation de conservation de la quantité de mouvement prend alors la forme simplifiée suivante :

$$\rho \cdot \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\vec{\nabla} p + \mu \cdot \Delta \vec{v} + \rho \cdot \vec{g} \quad (7)$$

L'écoulement de la suspension se faisant sur des temps longs, nous pouvons considérer l'état comme quasi-stationnaire et écrire qu'à chaque instant ;

$$\mu \cdot \Delta \vec{v} = \vec{\nabla} p - \rho \cdot \vec{g} \quad (8)$$

Nous considérons deux fluides, de viscosité  $\mu$  pour la suspension et  $\mu_0$  pour le fluide interstitiel. L'équation (8) implique que, pour un gradient de pression donné, les vitesses d'écoulement des deux fluides sont en rapport inverse de leur viscosité. Il s'ensuit que, pour un volume donné, la durée d'écoulement est directement proportionnelle à la viscosité :

$$\frac{\tau}{\tau_0} = \frac{\mu}{\mu_0} \quad (9)$$

Dans ce qui suit, nous allons successivement calculer  $\tau_0$  puis  $\phi_m$ . Ces deux valeurs nous permettront de calculer la durée d'écoulement  $\tau$  par chacun des trois modèles puis de comparer ces valeurs aux données expérimentales.

#### **4.2.2. Calcul de $\tau_0$ par le théorème de Bernoulli**

Pour calculer le temps de coulée  $\tau_0$  du fluide interstitiel de viscosité  $\mu_0$ , nous assimilons ce dernier à un fluide parfait. Les faibles viscosités du TNT et de l'additif à 85°C permettent de négliger le terme de dissipation due aux frottements visqueux dans l'équation de conservation de l'énergie. Ceci nous permet d'utiliser le théorème de Bernoulli. Dans la configuration schématisée sur la figure 8, ce dernier s'écrit :

$$\frac{\rho v_1^2}{2} + P_1 + \rho g z_1 = \frac{\rho v_2^2}{2} + P_2 + \rho g z_2 \quad (10)$$

où  $\rho$  (kg.m<sup>-3</sup>) représente la masse volumique du fluide supposée constante. En notant que la conservation de la masse s'écrit :

$$\rho v_1 4\pi d_1^2 = \rho v_2 4\pi d_2^2 \quad (11)$$

et que  $v_1 = -dh/d\tau$ , l'équation (10) peut s'écrire :

$$\frac{dh}{d\tau} = \sqrt{\left( \frac{a \cdot (h + b)}{c} \right)} \quad (12)$$

où  $a = 2 \cdot g$

$g$  = accélération de la pesanteur (9,81 m.s<sup>-2</sup>)

$b = (P_1 - P_2) / (\rho \cdot g)$

$c = (d_1/d_2)^4 - 1$

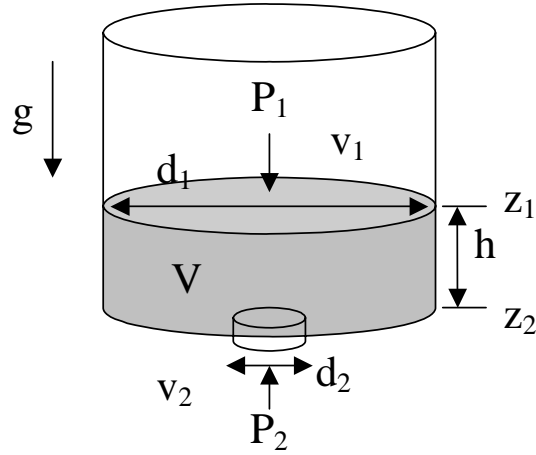


Figure 8 : Représentation de la cuve

$P_1 = P_{ext}$  = pression atmosphérique (Pa)

$P_2 = P_{ext}$  = pression atmosphérique (Pa)

$d_1$  = diamètre interne de la cuve (m)

$d_2$  = diamètre de la buse (m)

$v_1$  = vitesse du fluide en 1 ( $m.s^{-1}$ )

$v_2$  = vitesse du fluide en 2 ( $m.s^{-1}$ )

$h = z_1 - z_2$  = hauteur de fluide (m)

$V$  = volume du fluide ( $m^3$ )

$$\frac{\rho v_1^2}{2} + P_1 + \rho g z_1 = \frac{\rho v_2^2}{2} + P_2 + \rho g z_2 \quad (13)$$

L'intégration de cette relation, entre  $\tau = 0$  où  $h = h_0$  et  $\tau$  où  $h = h(\tau)$ , donne :

$$\sqrt{h(\tau) + b} = \sqrt{h_0 + b} - \tau \sqrt{\frac{a}{4.c}} \quad (14)$$

Le temps  $\tau_0$  au bout duquel il n'y plus de fluide dans la cuve est obtenu pour  $h_{(\tau_0)} = 0$  :

$$\tau_0 = \sqrt{\left(\frac{d_1}{d_2}\right)^4 - 1} \cdot \sqrt{\left(\frac{2}{g}\right)} \cdot \left[ \sqrt{h_0 + \frac{(P_1 - P_2)}{\rho g}} - \sqrt{\frac{(P_1 - P_2)}{\rho g}} \right] \quad (15)$$

Numériquement, nous trouvons  $\tau_0 = 12,8$  s.

#### 4.2.3. Calcul de $\phi_m$ par le modèle de De Larrard

Dans chacun des trois modèles présentés au paragraphe 4.1., le rapport  $\mu/\mu_0$  dépend de la fraction volumique théorique maximale  $\phi_m$ .

Actuellement de nombreuses études visent à améliorer les prédictions de viscosité en affinant les méthodes de calcul de  $\phi_m$  [10, 11, 12].

La forte similitude entre un béton et un explosif mis en œuvre par coulée portant sur la grande étendue des échelles granulométriques, le nombre et la géométrie des constituants nous a conduit à retenir le modèle développé par De Larrard [13, 14, 15]. Son modèle de prédiction de la compacité d'empilement de grains secs de tailles et de formes quelconques est fondé sur une approche géométrique. Le principe repose sur la séparation d'un ensemble de particules en N classes, caractérisées par une taille  $d_i$  tel que  $d_1 < \dots < d_i < d_{i+1} < \dots < d_N$ . La compacité du mélange est donnée à partir des compacités propres  $\beta_i$  (compacité atteinte par la classe  $i$  prise individuellement dans le volume que lui laissent les particules de taille supérieure; dans cet article, la compacité propre est assimilée à la compacité expérimentale  $C$ , donnée tableau 2), des proportions volumiques  $\alpha_i$  (par rapport au volume solide total) ainsi que des fonctions d'interactions ne dépendant que du rapport des diamètres des différents couples de particules  $i$ - $j$  [16]. Ces fonctions d'interactions sont données par les relations suivantes :

$$a_{ij} = \left( 1 - \left( 1 - \frac{d_j}{d_i} \right)^{1,02} \right)^{0,5} \quad \text{et} \quad b_{ij} = \left( 1 - \left( 1 - \frac{d_i}{d_j} \right)^{1,50} \right)^1 \quad (16)$$

La compacité d'une classe  $i$  est finalement donnée par :

$$\phi_i = \frac{\beta_i}{1 - (1 - \beta_i) \sum_{j=1}^{i-1} a_{ij} \alpha_j - \sum_{j=i+1}^N b_{ij} \alpha_j} \quad (17)$$

La compacité maximale d'un mélange de particules est finalement donnée par :

$$\phi_m = \min_{1 \leq i \leq N} \phi_i \quad (18)$$

Grâce à un logiciel d'optimisation granulaire basé sur le modèle de De Larrard présenté ci-dessus [17], nous avons calculé  $\phi_m$  pour les neuf mélanges étudiés (tableau 7).

N°essai	$\phi_m$
1	0,79
2	0,79
3	0,61
4	0,61
5	0,8
6	0,63
7	0,63
8	0,63
9	N/A

*Tableau 7 : Valeurs des compacités maximales  $\phi_m$  calculées*

Il est à noter que les paramètres requis par le logiciel sont la compacité expérimentale, la densité réelle et la distribution granulométrique des espèces pulvérulentes solides ainsi que leurs fractions massiques.

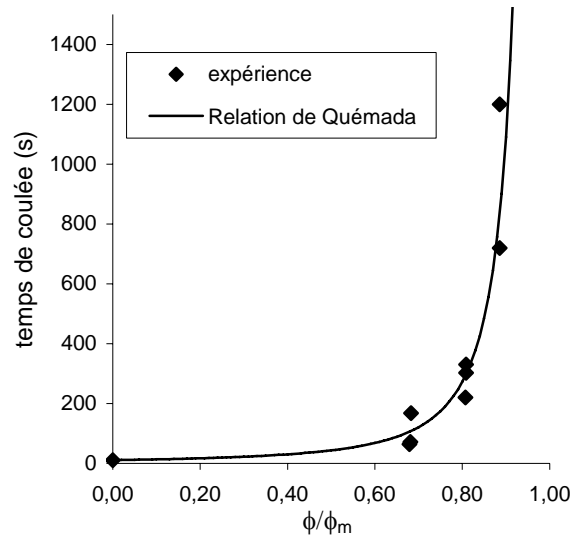
#### **4.2.4. Calcul du temps de coulée théorique $\tau$ .**

Nous pouvons désormais calculer le rapport  $\phi/\phi_m$  pour chacun des essais puis utiliser les trois modèles pour évaluer  $\mu/\mu_0$  et enfin le temps de coulée théorique  $\tau$ . Le tableau 8 rassemble les résultats obtenus. Le temps de coulée expérimental est rappelé.

N°Essai	$\phi$	$\phi/\phi_m$	$\tau$ (s)			Exp.
			Quémada	Krieger-Dougherty	Mooney	
1	0,54	0,68	128	124	912	72
2	0,54	0,68	128	124	912	168
3	0,54	0,89	972	348	1645790	720
4	0,54	0,89	972	348	1645790	1200
5	0,54	0,68	121	121	815	64
6	0,51	0,81	353	174	10334	330
7	0,51	0,81	353	174	10334	303
8	0,51	0,81	353	174	10334	220
9	N/A	0	13	13	13	11

**Tableau 8 : Résultats expérimentaux et théoriques**

Les résultats théoriques issus des relations de Krieger-Dougherty et Mooney s'éloignent fortement des résultats expérimentaux. La figure 9 montre la comparaison entre les temps de coulée expérimentaux et les temps de coulée calculés en fonction de la relation de Quémada. Nous trouvons que le modèle de Quémada reflète correctement les résultats expérimentaux.



**Figure 9 : Comparaison des résultats expérimentaux et de la relation de Quémada**

#### **4.2.5. Discussion**

Les hypothèses faites sur les propriétés du fluide interstitiel se corrélaient assez bien à l'expérience. Le temps de coulée de 5700 cm<sup>3</sup> de fluide interstitiel calculé est de 12,8 s et le temps expérimental (essai 9) de 11 s. L'hypothèse du fluide parfait peut donc être tolérée pour le calcul du  $\tau_0$ . Avec une phase liquide constituée d'une fraction volumique de 0,72 en TNT (11,6 mPa.s à 85°C) et 0,28 en additif (48,6 mPa.s à 85°C), la perte d'énergie par effet visqueux reste négligeable et l'équation de Navier-Stokes peut se simplifier et mener à la relation de Bernoulli.

De manière qualitative, les différentes valeurs de  $\phi / \phi_m$  se font ressentir sur la texture des pâtes énergétiques (figure 7). Ainsi lorsque  $\phi / \phi_m$  est le plus proche de 1 (essai 3 et 4), c'est-à-dire

proche du blocage de la structure, la texture est très pâteuse. Alors que lorsque  $\phi / \phi_m$  diminue (essai 1) ou s'éloigne de 1, la pâte énergétique est nettement moins consistante.

Les relations de viscosité retenues dans le cadre de cette étude présentent un seul paramètre à identifier: la compacité maximale. L'ajustement des résultats expérimentaux est plus satisfaisant avec le modèle de Quémada. Il est fort probable qu'un modèle à 2 paramètres tel celui de Krieger-Dougherty dont le terme en puissance soit ajustable (différent de  $2,5 \phi_m$ ) puisse être également ajusté; cela pour traduire un effet de forme. Ce qui peut être envisageable lorsqu'on observe la morphologie des particules figures 4 et 5. Ceci imposerait une multiplication des essais pour obtenir un calage acceptable.

## 5-CONCLUSION

Pour des suspensions de compositions différentes, nous avons réalisé différentes expériences de coulée gravitaire et mesuré le temps nécessaire au passage d'un certain volume à travers un orifice.

La comparaison des résultats expérimentaux avec 3 relations de viscosité utilisées dans le domaine des suspensions concentrées a montré un calage satisfaisant avec la relation suivante :

$$\tau = \tau_0 \cdot \left(1 - \frac{\phi}{\phi_m}\right)^{-2}$$

où  $\tau_0 = 12,8$  s.

Ce résultat ne s'applique qu'avec les matériaux employés et dans des conditions expérimentales particulières, et ne peut être en aucun cas généralisé, Ceci pour plusieurs raisons: les modèles de viscosité, pour des suspensions très concentrées, n'ont aucun fondement scientifique. De la recherche d'équations fonctionnelles par Mooney [9] à l'application de la théorie du contrôle optimal par Quémada [8], ces relations se confortent à un calage des coefficients sur les résultats expérimentaux. D'autre part, au niveau expérimental, la mesure du temps d'écoulement pour des suspensions à la texture très "pâteuse" semble limiter au fait qu'un certain volume de matière ne peut s'écouler. Des essais de type "slump" sembleraient plus adaptés à l'étude rhéologique de nos matériaux.

Néanmoins des points intéressants ressortent de ces travaux. D'une part, le temps d'écoulement du fluide interstitiel calculé par la relation de Bernoulli satisfait à l'expérience ( $\tau_{0 \text{ calculé}} = 12,8$ s et  $\tau_{0 \text{ exp}} = 11$ s). L'hypothèse, que les pertes d'énergie par effets visqueux du fluide interstitiel soient négligeables, semble valide. D'autre part, l'application du modèle de De Larrard nous permet d'appréhender la bonne ou mauvaise coulabilité ainsi que la texture de nos matériaux. L'utilisation de ce modèle, développé dans le domaine du génie civil paraît donc transposable à celui de la pyrotechnie.

## 6-RÉFÉRENCES

- [1] Teipel, U., Energetic Materials, Particle Processing and Characterization. (WILEY-VCH, Weinheim, 2005)
- [2] De Larrard, F. Ferraris, C.F., Rhéologie du béton frais remanié. *Bulletin des Laboratoires des Ponts et Chaussées*, 213, réf.4176, 73-89 (1998)
- [3] Flatt, J.R. Martys, N.S. Bergström, L., La rhéologie des Matériaux Cimentaires. *Ciments, Bétons, Plâtres, Chaux*, 867, 48-55 (2004)
- [4] Ferraris, C.F., Measurement of the Rheological Properties of High Performance Concrete : State of the Art Report. *J. Res. Nati. Inst. Stand. Technol*, 104, 461-476 (1999)

- [5] Parry, M.A., Billon, H.H., A note on the coefficient of viscosity of pure molten 2,4,6-trinitrotoluene (TNT). *Rheol. Act.*, 28, 661-663 (1988)
- [6] Einstein, A., Eine neue Bestimmung der Moleküldimensionen. *Annalen der Physik*, 19, 289-306 (1906).
- [7] Krieger, I.M., Dougherty, T.J., A mechanism for non-Newtonian flow in suspensions of rigid spheres. *Trans. Soc. Rheol.*, 3, 137-152 (1959)
- [8] Quemada, D., Rheology of concentrated dispersion systems and minimum energy dissipation. *Rheol. Act.*, 16, 82-94 (1977)
- [9] Mooney, M. The viscosity of concentrated suspensions of spherical particles. *J. Colloid Interface Sci*, 6, 162 (1951)
- [10] Toutou, Z. Lanos, C. Mélingue, Y. Roussel, N., Modèle de viscosité multi-échelle : de la pâte de ciment au micro-béton. *Rhéologie*, 5, 1-9 (2004)
- [11] Qin, K. Zaman, A., Viscosity of concentrated colloidal suspensions : comparison of bidisperse models. *J. Colloid Interface Sci*, 266, 461-467 (2003)
- [12] Berli, C.L. Deiber, J.A. Quemada, D., On the viscosity of concentrated suspensions of charged colloids. *Latin American Applied Research*, 35, 15-22 (2005)
- [13] De Larrard, F., *Formulation et propriétés des bétons à très hautes performances*. Thèse de Doctorat de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Rapport de recherche des LPC N°149, (1988)
- [14] De Larrard, F., Buil, M., Granularité et Compacité dans les matériaux de Génie Civil. *Matériaux et Construction*, RILEM, 20, 117-126 (1997)
- [15] De Larrard, F., *Structures granulaires et formulation des bétons*. Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, Ouvrage d'art OA 34, (avril 2000)
- [16] Bourmonville, B., Coussot, P., Château, X., Modification du modèle de Farris pour la prise en compte des interactions géométriques d'un mélange polydisperse de particules. *Rhéologie*, 7, 1-8 (2005)
- [17] Sedran, T., De Larrard, F., *RENE-LCPC – un logiciel pour optimiser la granularité des matériaux de génie civil*. Note Technique, Bulletin de Liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées, N°194, Novembre-Décembre (1994)

## **REMERCIEMENTS**

L'auteur remercie particulièrement L. Chouris, Responsable Production, A. Werckerle, Responsable Projet, et Giat-industries pour la réalisation des essais.